

УДК 538.9

**МОДЕЛЮВАННЯ ПРОЦЕСУ ОКСИДАЦІЇ ЧАДНОГО  
ГАЗУ НА ПЛОСКІЙ ПОВЕРХНІ КАТАЛІЗАТОРА****П.П. Костробій, І.А. Рижка***Національний університет "Львівська політехніка"**ira.saj@gmail.com*

*У статті досліджено двовимірну модель оксидації чадного газу (СО) на поверхні платинового каталізатора з урахуванням процесів перебудови поверхні каталізатора та впливу температури підложки.*

*Kostrobij P.P., Ryzha I.A. Modeling of carbon monoxide oxidation process on the flat catalyst surface. In this article the two-dimensional mathematical model for carbon monoxide (CO) oxidation on the surface of Platinum catalyst is investigated accounting for the processes of the catalyst surface reconstruction and the effect of the substrate temperature.*

*Ключові слова:* КАТАЛІТИЧНА РЕАКЦІЯ ОКИСЛЕННЯ, РЕАКЦІЙНО-ДИФУЗІЙНА МОДЕЛЬ.

*Keywords:* REACTION OF CATALYTIC OXIDATION, REACTION-DIFFUSION MODEL.

Розглянуто модель реакції каталітичного окислення чадного газу (СО), що враховує процес дифузії молекул СО на поверхні платини Pt(110), для якої характерними є процеси поверхневої перебудови. Поверхня каталізатора вважається плоскою з заданою декартовою системою координат ХОУ. Система кінетичних рівнянь, що описує динаміку моделі [1, 2]:

$$\frac{\partial u}{\partial t} = p_u \kappa_u s_u \left(1 - (u/u_{sat})^3\right) + k_{des} u + k_r uv + D_x \frac{\partial^2 u}{\partial x^2} + D_y \frac{\partial^2 u}{\partial y^2} \quad (1)$$

$$\frac{\partial v}{\partial t} = p_v \kappa_v s_v \left(1 - u/u_{sat} - v/v_{sat}\right)^2 + k_r uv \quad (2)$$

$$\frac{\partial w}{\partial t} = k_{ph} \left( \left( 1 + \exp \left( \frac{u_0 - u/u_{sat}}{\delta u} \right) \right)^{-1} - w \right) \quad (3)$$

Тут  $u$  та  $v$  – поверхневі покриття СО та О відповідно;  $p_u$ ,  $p_v$  – парціальні тиски;  $\kappa_u$ ,  $\kappa_v$  – частоти зіткнень молекул з поверхнею;  $s_u$ ,  $s_v$  – коефіцієнти налипання;  $u_{sat}$ ,  $v_{sat}$  – покриття насичення;  $w$  – частка поверхні неперебудованої структури (1×1) на поверхні Pt(110);  $k_r$ ,  $k_{des}$ ,  $k_{ph}$  – коефіцієнти, які характеризують відповідно швидкості реакції, десорбції СО та структурного фазового переходу;  $D_x$ ,  $D_y$  – коефіцієнти дифузії СО в напрямку координат  $x$  та  $y$ ;  $u_0$ ,  $\delta u$  – параметри структурного фазового переходу. Коефіцієнт налипання кисню  $s_v$  у рівнянні (2) записується як лінійна комбінація значень для структур (1×2) та (1×1):  $s_v = s_v^{1 \times 1} w + s_v^{1 \times 2} (1 - w)$ . Коефіцієнти швидкостей реакції, десорбції та фазового переходу залежать від температури і підпорядковуються рівнянням Арреніуса:

$$k_r[T] = k_r^0 \exp(-E_r/RT), \quad k_{des}[T] = k_{des}^0 \exp(-E_{des}/RT), \\ k_{ph}[T] = k_{ph}^0 \exp(-E_{ph}/RT),$$

Тут  $k_r^0$ ,  $k_{des}^0$ ,  $k_{ph}^0$  – коефіцієнти, які не залежать від температури;  $E_r$ ,  $E_{des}$ ,  $E_{ph}$  – енергії активації;  $R$  – універсальна газова стала.

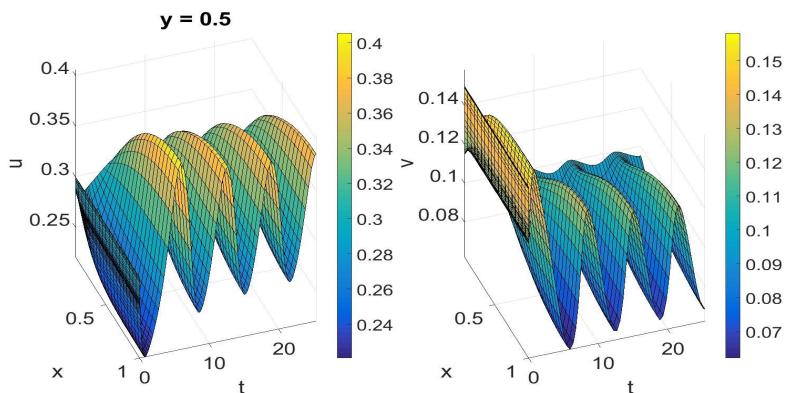
Для повноти моделі враховано генеровані при хімічних реакціях теплові процеси. У феноменологічному формулюванні [3] рівняння теплового балансу є таким:

$$c_p \rho \frac{\partial T}{\partial t} = \kappa_{cond} \left( \frac{\partial^2 T}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 T}{\partial y^2} \right) + \frac{\sqrt{2}}{d^2 L N_A} \left[ \Delta H_{des} k_{des} u + \Delta H_r k_r uv + \right. \\ \left. \Delta H_{u,ads} p_u \kappa_u s_u (1 - (u/u_{sat})^3) + \Delta H_{v,ads} p_v \kappa_v s_v (1 - (v/v_{sat})^2) \right] \quad (4)$$

де  $c_p$  – теплоємність,  $\rho$  – густина,  $\kappa_{cond}$  – теплопровідність каталізатора,  $d$  – довжина ребра елементарної комірки

кристалічної ґратки,  $L$  – товщина плівки,  $N_A$  – число Авогадро.

Результати числового аналізу двовимірної математичної моделі (1)-(4) подано на графіку.



Врахування двовимірності приводить до зміни області стійкості реакції окислення CO. Як і в одновимірній моделі [4] в області стійкості реакція окислення CO на поверхні Pt-катализатора є періодичною. Амплітудні значення парціальних тисків  $p_u$  та  $p_v$  залежать від вимірності моделі та від співвідношення  $D_0 = D_y / D_x$ .

### Література

- 1.K. Krischer, M. Eiswirth, and G. Ertl. Oscillatory CO oxidation on Pt(110) – Modeling of temporal self-organization. J. Chem. Phys.– 1992. – 96. – P.9161-9172
- 2.I.S. Bzovska, I.M. Mryglod. Chemical oscillations in catalytic CO oxidation reaction. Condens. Matter Phys. – 2010. – Vol.13, N.3. – P.34801-1-5.
- 3.Cisternas Y., Ph. Holmes, I.G. Kevrekidis, X. Li. CO oxidation on thin Pt crystals: Temperature slaving and derivation of lumped models. J. Chem. Phys. – 2003. – V.118, N.7. – P.3312-3328.
- 4.Бзовська І.С., Мриглод І.М. Поверхневі структури в каталітичній реакції монооксиду вуглецю. Укр. фіз. журн. Т.61, №2, 140-148 (2016).